



㉑ **Anmelder:**  
Deggendorfer Werft und Eisenbau GmbH, 94469  
Deggendorf, DE

㉒ **Vertreter:**  
Boeters & Bauer, 81541 München

㉓ **Erfinder:**  
Gütlhuber, Friedrich, Dipl.-Ing., 94526 Metten, DE

⑤⑤ **Entgegenhaltungen:**  
US 54 45 801  
US 42 21 763

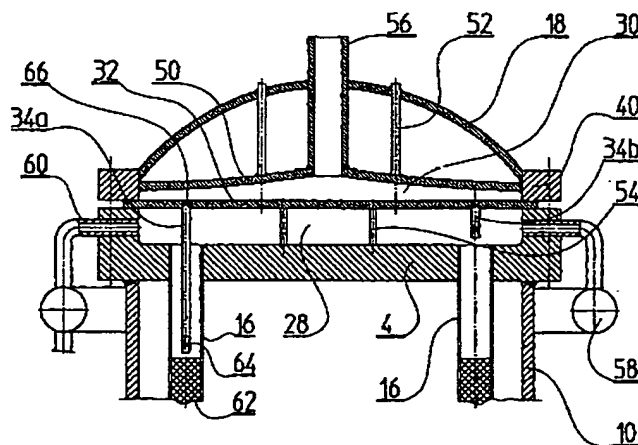
Best Available Copy

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

⑤④ **Röhrenreaktor zur Durchführung exothermer Gasphasenreaktionen**

⑤⑦ Ein Röhrenreaktor (2) zur Durchführung exothermer Gasphasenreaktionen und mit einem sich abgedichtet zwischen zwei Rohrböden (4, 6) erstreckenden, von einem Reaktionsgasgemisch durchströmten Reaktionsrohrbündel (8), das innerhalb eines umgebenden Reaktormantels (10) von einem Wärmeträger umspült wird, sowie mit einer den jeweiligen Rohrboden (4, 6) überspannenden Haube (18, 20) in Verbindung mit einer Gaszuführungs- bzw. einer Gasabführungsleitung kennzeichnet sich dadurch, daß sich innerhalb der gaseintrittsseitigen Haube (18) neben einer mit dem Inneren der Reaktionsrohre (16) in Verbindung stehenden ersten Gaszuführungskammer (28) eine separat speisbare und einen eigenen Rohrboden (32) aufweisende zweite Gaszuführungskammer (30) in Vermindung mit in das Gaseintrittsende oder bis unmittelbar vor das Gaseintrittsende der Reaktionsrohre (16) ragenden separaten Gaszuführungsrohren (34) für ein zweites Reaktionsgas befindet. Dadurch wird bei verhältnismäßig einfacher konstruktiver Ausführbarkeit eine vorzeitige Beimischung eines explosionskritischen Reaktanten zu dem Reaktionsgasstrom vermieden, womit dessen Beladung mit diesem Reaktanten verbessert werden kann.



[0001] Die Erfindung betrifft einen Röhrenreaktor gemäß Gattungsbegriff des Patentanspruchs 1.

[0002] Derartige Röhrenreaktoren finden für vielerlei chemische Reaktionsprozesse Verwendung, unter anderem die katalytische Oxidation von Kohlenwasserstoffen wie zum Beispiel zur Herstellung von Ethylenoxid oder von Essigsäure. Dabei erfolgt die Umsetzung beispielsweise im Kreislaufverfahren, wobei vor Eintritt in den Reaktor laufend frisches Reaktionsgas zugesetzt und nach dem Austritt aus dem Reaktor die abzuführenden Stoffströme abgetrennt werden. Die Ausbeute pro Durchgang und damit auch die Größe des Reaktors samt zugehöriger Aggregate wie Pumpen, Gebläse und dergl. sowie die dafür erforderliche Antriebsleistung hängen wesentlich von der Effizienz der Umsetzung und diese wiederum von dem Mischungsverhältnis der Reaktanten ab. Dieses findet indessen Grenzen in der Beherrschbarkeit der anfallenden Reaktionswärmemenge und in manchen Fällen auch in einem Abbrand- oder sogar Explosionsrisiko. So ist man dabei herkömmlicherweise etwa gezwungen, den  $O_2$ -Anteil am Eintritt des Reaktors auf wenige Prozent zu begrenzen. Ähnliche Probleme bestehen beispielsweise bei der Herstellung von Phthalsäureanhydrid, Maleinsäureanhydrid, Acrolein und Acrylsäure.

[0003] Durch mancherlei Maßnahmen ist es bereits gelungen, die Beladung des Reaktionsgasgemisches mit einer kritischen Komponente, wie z. B.  $O_2$ , dadurch zu steigern, daß man die sich entlang den Kontaktrohren einstellende Temperatur in gewünschter Weise über den Wärmeträgerkreislauf steuert. Maßnahmen hierfür sind etwa DE-C-22 01 528 zu entnehmen, wonach der Reaktor in mehrere aufeinanderfolgende Abschnitte mit mehr oder weniger separaten Wärmeträgerkreisläufen und ggf. auch unterschiedlichen Katalysatorfüllungen unterteilt sein kann und dazu noch verschiedenartige Umlenk- und/oder Verteilerplatten Verwendung finden können. Des weiteren wurde bereits vorgeschlagen, zumindest einen Anteil der kritischen Komponente erst nach und nach im Zuge des Reaktionsablaufes zuzuführen, so z. B. mittels durch die Reaktionsrohre hindurchlaufender separater Gaszuführungsrohre mit verstreuten oder auch diskreten aufeinanderfolgenden Gasaustrittsstellen (Tonkovich et al. "Inorganic Membrane Reactors for the Oxidative Coupling of Ethane", Chem. Engineering Science, Vol. 51, No. 11, 1996, S. 3051-3056, bzw. US-A-5,723,094). Derartige Gaszuführungsrohre sind freilich, vor allem in industriellem Umfang, nur schwer zu verwirklichen, nicht zuletzt was eine wünschenswerte Verteilung des Gasaustritts über die Rohrlänge angeht, aber auch hinsichtlich der Gaszuführung zu einer Vielzahl solcher Gaszuführungsrohre, die bei einem industriellen Röhrenreaktor etwa 10.000 oder mehr betragen kann.

[0004] Der Erfindung liegt von daher die Aufgabe zugrunde, bei einem Röhrenreaktor konventioneller Art gemäß Gattungsbegriff des Patentanspruchs 1 auf rationelle Weise die Möglichkeit zu schaffen, die Beladung des Reaktionsgasgemisches mit einer entflammungs- oder gar explosionskritischen Komponente zu vergrößern.

[0005] Diese Aufgabe ist maßgeblich mit den Kennzeichnungsmerkmalen des Patentanspruchs 1 gelöst. Die Unteransprüche geben dazu vorteilhafte Ausgestaltungsmöglichkeiten oder auch Zusatzmaßnahmen an.

[0006] Die betreffenden kurzen Gaszuführungsrohre in Verbindung mit einer zugehörigen Gaszuführungskammer innerhalb der Gaseintrittshaube ermöglichen es, eine entflammungs- oder explosionskritische Reaktionsgaskomponente erst unmittelbar vor Beginn der angestrebten Reaktion zuzuführen und, sollte es – etwa infolge einer Fehlsteuerung

– doch einmal zu einer Entflammung oder gar Explosion kommen, die Zufuhr dieser Komponente rasch zu unterbinden, vor allem wenn die betreffende Gaszuführungskammer ein kleines Volumen erhält, um so die Ausbreitung des Abbrands im Reaktor zu begrenzen und vor allem den sich innerhalb des Reaktors einstellenden Druckanstieg gering und leicht beherrschbar zu halten. Dazu noch erübrigen sich Abdichtungsprobleme bezüglich einer Wandhindurchführung der Gaszuführungsrohre, wie sie etwa nach US-A-5,723,094 zu erwarten sind. Auch können die Gaszuführungsrohre nach der Erfindung mitsamt ihrer Gaszuführungskammer entnommen werden, um so die Befüllung der Reaktionsrohre mit Katalysator nicht zu behindern.

[0007] Die Einspeisung eines zweiten Reaktanten in die Reaktionsrohre eines Röhrenreaktors über in dem Gaseintrittsbereich der Reaktionsrohre endende eigene Zuführungsrohre ist zwar bereits anderweitig, etwa aus US-A-4,221,763, bekannt, doch handelt es sich hiernach um eine verhältnismäßig geringe Zahl einzeln durch die Gaseintrittshaube hindurchgeführter und dort entsprechend abzudichtender Rohre, durch die etwa Kohlenstaub eingeblasen wird. In ähnlicher Weise finden in Reaktionsrohre mündende Gaszuführungsrohre bei mancherlei Reformern (z. B. WO97/05947) oder auch zum Mischen von Gasen mit Flüssigkeiten in sog. Falling-Film-Reaktoren (z. B. US-A-5,445,801) Verwendung.

[0008] Nachfolgend werden einige vorteilhafte Ausführungsbeispiele und Ausgestaltungsmöglichkeiten der Erfindung anhand der Figuren genauer beschrieben. Von diesen zeigt

[0009] Fig. 1 einen schematischen Längsschnitt durch einen erfindungsgemäßen Röhrenreaktor gemäß einem ersten Ausführungsbeispiel,

[0010] Fig. 2 einen schematischen Längsschnitt durch den Gaseintrittsbereich eines erfindungsgemäßen Röhrenreaktors in einer anderen Ausführungsform,

[0011] Fig. 3 einen ebensolchen Längsschnitt gemäß einem dritten Ausführungsbeispiel,

[0012] Fig. 4 einen ebensolchen Längsschnitt gemäß einem vierten Ausführungsbeispiel,

[0013] Fig. 5 einen ebensolchen Längsschnitt gemäß einem fünften Ausführungsbeispiel,

[0014] Fig. 6, stark vergrößert, eine beispielhafte Ausbildung des Gaszutritts zu den Gaszuführungsrohren nach der Erfindung samt deren Anschluß an den betreffenden Rohrboden,

[0015] Fig. 7 eine andere beispielhafte Ausführungsform des Gaszutritts zu den Gaszuführungsrohren,

[0016] Fig. 8 eine dritte beispielhafte Ausführungsform des Gaszutritts zu den Gaszuführungsrohren,

[0017] Fig. 9 noch eine weitere beispielhafte Ausführungsform des Gaszutritts zu den Gaszuführungsrohren,

[0018] Fig. 10 einen geschnittenen Abschnitt eines Reaktionsrohres mit dem darin befindlichen Ende des betreffenden Gaszuführungsrohres und

[0019] Fig. 11 ein Schema eines erfindungsgemäßen Röhrenreaktors ähnlich demjenigen der Fig. 1, jedoch mit schematisch angegebenen Mitteln für eine besondere Art der Temperatursteuerung entlang den Kontaktrohren.

[0020] Der in Fig. 1 dargestellte Röhrenreaktor 2 besitzt in insoweit üblicher Weise ein sich abgedichtet zwischen zwei Rohrböden 4 und 6 erstreckendes Reaktionsrohrbündel 8, das innerhalb eines umgebenden Reaktormantels 10 von einem im Betrieb flüssigen Wärmeträger, gewöhnlich in Gestalt eines Salzbad, umspült wird. In dem gezeigten Beispiel tritt Wärmeträger am gasaustrittsseitigen Ende des Reaktormantels 10 durch einen Rohrstutzen 12 ein und am gaseintrittsseitigen Ende durch einen Rohrstutzen 14 aus, je-

doch könnten Ein- und Austritt des Wärmeträgers auch in bekannter Weise über Ringkanäle erfolgen, ebenso wie der Wärmeträger generell im Gleichstrom anstatt im Gegenstrom in bezug auf das Reaktionsgasgemisch durch den Reaktormantel 10 hindurchtreten könnte. Sodann könnte das Reaktionsgasgemisch auch von unten nach oben anstatt, wie gezeigt, von oben nach unten durch die Reaktionsrohre 16 hindurchtreten.

[0021] Den stimmseitigen Abschluß des Reaktors 2 bilden im wesentlichen nach außen gewölbte Hauben 18 und 20 mit zentralen Gaseintritts- und Gasaustrittsstutzen 22 bzw. 24.

[0022] Während jedoch bei herkömmlichen Röhrenreaktoren die gaseintrittsseitige Haube selbst eine einzige mit den Reaktionsrohren 16 in Verbindung stehende Gaszuführungskammer bildet, um den Reaktionsrohren fertig vorge-mischtes Reaktionsgas zuzuführen, ist bei dem Reaktor 2 gemäß Fig. 1 zwischen die gaseintrittsseitige Haube, 18, und den gaseintrittsseitigen Rohrboden 4 zur Speisung der Reaktionsrohre 16 eine durch einen seitlichen Rohrstutzen 26 hindurch speisbare erste Gaszuführungskammer 28 zwischengeschaltet, die von einer unter der Haube 18 liegenden zweiten Gaszuführungskammer 30 durch einen weiteren Rohrboden, 32, getrennt ist. In dem Rohrboden 32 sind, darin abgedichtet, nach unten hin bis in die Reaktionsrohre 16 hineinragende Gaszuführungsrohre 34 für die Einspeisung eines zweiten gasförmigen Reaktanten verankert, der in die zweite Gaszuführungskammer 30 durch den Gaseintrittsstutzen 22 hindurch eintritt. Der Rohrboden 32 ist abgedichtet zwischen einem Flansch 36 der zylindrischen Seitenwand 38 und einem entsprechenden Flansch 40 an der Haube 18 eingespannt. Im Gegensatz zu den Rohrböden 4 und 6, die das Gewicht des Rohrbündels 8 und zum Teil auch dasjenige des innerhalb des Reaktormantels 10 befindlichen Wärmeträgers zu tragen sowie ggf. einer größeren Druckdifferenz zu widerstehen haben, kann der Rohrboden 32 bei geringer Druckdifferenz zwischen dem ersten und zweiten eingeführten Reaktanten verhältnismäßig leicht ausgeführt werden. Dies gilt umso mehr, wenn der Rohrboden 32, wie gezeigt, auf dem Rohrboden 4 mittels Tragstangen 42 abgestützt ist.

[0023] Innerhalb der Gaszuführungskammer 30 ist eine transversale Gasverteilungsplatte 41 zu erkennen, die mit nach Strömungsverteilungsgesichtspunkten variierenden Durchbrechungen prinzipiell ähnlich gestaltet sein kann wie die in DE-C-22 01 528 (dort allerdings für den Wärmeträger) angegebenen "Umlenkscheiben" 60 und 61.

[0024] Eine über Füße 44 mit einigem Abstand auf dem Rohrboden 4 aufliegende, vorzugsweise aber dennoch gasdurchlässige Zentrierplatte 46 hält die unteren Enden der Gaszuführungsrohre 34 in zentrierter Position in bezug auf die Reaktionsrohre 16. Bei großer Gasdurchlässigkeit, wie sie bei einer solchen Platte ohne weiteres zu verwirklichen ist, kann die Zentrierplatte 46 auch unmittelbar auf dem Rohrboden 4 aufliegen. Die Zentrierplatte 46 ist auf den Gaszuführungsrohren 34 verschiebbar. Nach Entfernen der Haube 18 kann der Rohrboden 32 mitsamt den Gaszuführungsrohren 34 und der Zentrierplatte 46 entnommen werden, welche dabei auf Vorsprüngen an den unteren Enden der Gaszuführungsrohre 34 zu liegen kommt, um so beim Wiederausammenbau die Einführung der Gaszuführungsrohre 34 in die zugehörigen Reaktionsrohre 16 zu erleichtern.

[0025] Soweit bei den nachfolgend beschriebenen weiteren Ausführungsbeispielen gleichartige Elemente auftreten, finden für diese die gleichen Bezugszeichen Verwendung wie bei dem Ausführungsbeispiel nach Fig. 1.

[0026] Gemäß Fig. 2 ist das Volumen der zweiten Gaszu-

führungskammer 30 von einem Einbau in Gestalt einer in die Haube 18 eingeschweißten Platte 50 begrenzt, die sich an der Haube 18 über Tragstangen 52 abstützt, ebenso wie der Rohrboden 32 sich an dem Rohrboden 4 über Tragstangen 54 abstützt. Während die Tragstangen 52 an die Haube 18 angeschweißt sind, ruhen die Tragstangen 54 aus Demontierbarkeitsgründen auf dem Rohrboden 4 lose auf.

[0027] In diesem Fall erfolgt die Zuführung des zweiten Reaktanten zu der zweiten Gaszuführungskammer 30 über ein massives, die Haube 18 durchsetzendes zentrales Rohr 56, das zugleich ebenfalls der Abstützung der Platte 50 an der Haube 18 dienen kann. Wie ersichtlich, ist die Platte 50 gewölbt, um auf diese Weise der Kammer 30 eine nach außen zu abnehmende Höhe zu vermitteln, welche der nach außen zu abnehmenden Menge des radial durch die Kammer 30 hindurchtretenden zweiten Reaktanten entspricht, um auf diese Weise der Kammer 30 ein kleinstmögliches Volumen zu verleihen. Als weitere Variante gegenüber Fig. 1 erfolgt die Zuführung des ersten Reaktanten zu der ersten Gaszuführungskammer 28 gemäß Fig. 2 aus einer Ringleitung 58 über eine Mehrzahl radial einmündender Rohre 60. Dies erlaubt es, auch die Gaszuführungskammer 28 niedrig und so ihr Volumen klein zu halten, um auch die Zufuhr des ersten Reaktanten – gewöhnlich eines bereits für sich reaktionsfähigen Gemischs – rasch unterbinden und überdies seine Verweildauer in dem Reaktor gering halten zu können. Es hat sich nämlich gezeigt, daß die Selbstzündwahrscheinlichkeit eines insofern kritischen Gasgemisches mit der Dauer seines Bestehens zunimmt.

[0028] In bezug auf die Gaszuführungsrohre 34 sind auf beiden Seiten der Fig. 2 zwei Varianten gezeigt, die in Wirklichkeit alternativ und nicht nebeneinander auftreten werden. Auf der linken Seite ist ein Gaszuführungsrohr 34a in das betreffende Reaktionsrohr 14 hinein und bis unmittelbar vor eine darin befindliche Katalysatorfüllung 62 reichend gezeigt, während das Gaszuführungsrohr 34b auf der rechten Seite der Fig. 2 nur bis vor das gaseintrittsseitige Ende des zugehörigen Reaktionsrohres 16 reicht. Statt frei vor der Katalysatorfüllung 62 könnte das Gaszuführungsrohr 34a freilich auch innerhalb einer dieser vorausgehenden Inertmaterialschiicht enden.

[0029] In beiden gezeigten Fällen ist am Ende des Gaszuführungsrohres 34 eine Mischdüse 64, hier in Gestalt eines Venturirohres, zu erkennen, während sich am Eintrittsende des Gaszuführungsrohres eine Drosselstelle 66 befindet, um den Gaszutritt zu wie auch den Gasaustritt aus dem Gaszuführungsrohr 34 zu dosieren. Diese Dosierung vermag erforderlichenfalls auch einem radialen Druckabfall innerhalb der Gaszuführungskammer 30 Rechnung zu tragen. Die Mischdüse 64 soll eine möglichst rasche und effektive Beimischung des zweiten zu dem ersten Reaktanten bewirken. Unter Umständen können an dem Gaszuführungsrohr (34) auch mehrere solche Mischdüsen vorgesehen sein.

[0030] Es versteht sich, daß der betreffende Reaktor 2 in Wirklichkeit weit mehr als die gezeigten zwei Reaktionsrohre 16 und Gaszuführungsrohre 34 aufweisen wird und die Darstellung in Fig. 2 (und weiteren) nur illustrativ zu verstehen ist.

[0031] Die Ausführung gemäß Fig. 3 unterscheidet sich von derjenigen nach Fig. 2 insoweit, als hier die Haube 18 mit der Gaszuführungskammer 28 eine Einheit bildet, indem der Rohrboden 32 ebenso wie die Platte 50 an die Haube 18, genauer gesagt einen zylindrischen Flanschring 68 derselben, angeschweißt ist. In diesem Fall ist an den Tragstangen 52 neben der Platte 50 auch der Rohrboden 32 aufgehängt.

[0032] Nach Fig. 4 ist der Rohrboden 32 ebenso wie die Platte 50 konisch bzw. gewölbt, um aus den vorausgehend

genannten Gründen neben der zweiten Gaszuführungskammer 30 auch der ersten Gaszuführungskammer 28 ein geringstmögliches Volumen und überdies dem Rohrboden 32 größere Steifigkeit zu geben. Davon abgesehen entspricht diese Ausfühungsform weitgehend derjenigen aus Fig. 3. [0033] Nach Fig. 5 ist eine baulich separate zweite Gaszuführungskammer 30 innerhalb der ersten Gaszuführungskammer 28 angeordnet, die in diesem Fall von einem an die Peripherie des Rohrbodens 4 anschließenden zylindrischen Flanschansatz 70 sowie der gaseintrittsseitigen Haube 18 gebildet wird. Die Zuführung des ersten Reaktanten zu der Gaszuführungskammer 28 erfolgt durch einen außermittig in der Haube 18 angeordneten Rohrstutzen 72, während die Zuführung des zweiten Reaktanten zu der Gaszuführungskammer 30 wiederum durch ein die Haube 18 durchsetzendes zentrales Rohr 56 geschieht, das in diesem Fall jedoch zwecks Demontierbarkeit der Kammer 30 geteilt ist.

[0034] Der Rohrboden 32 der Gaszuführungskammer 30 ist über Schraubbolzen 74 mit Abstand über dem Rohrboden 4 angebracht. Die obere Begrenzung der Kammer 30 wird von einer flachen Schale 76 gebildet, die über hohle Schraubbolzen 78 mit dem Rohrboden 32 verschraubt ist. Für den durch den Rohrstutzen 72 eintretenden ersten Reaktanten ist die Kammer 30 umgehbar, und überdies vermag er durch die hohlen Schraubbolzen 78 hindurchzutreten, um so seinen Weg in die Reaktionsrohre 16 zu finden.

[0035] In den Fig. 6-9 ist jeweils der Rohrboden 32 der zweiten Gaszuführungskammer 30 mit einem darin ein- oder daran angeschweißten Gaszuführungsrohr 34 sowie die betreffende Drosselstelle 66 zu erkennen. Gemäß Fig. 6 wird die Drosselstelle 66 von einer angefasten Bohrung 90 innerhalb einer Stirnwand 92 des Rohres 34, gemäß Fig. 7 von einem Bund 94 innerhalb einer Durchbohrung 96 des Rohrbodens 32, gemäß Fig. 8 von einem hohlen, entsprechend dimensionierten Schraubnippel 98 innerhalb einer abgesetzten Durchbohrung 100 des Rohrbodens 32 und gemäß Fig. 9 von einer durch eine Kreuzbohrung 102 seitlich zugängigen axialen Bohrung 104 innerhalb eines massiven Endabschnitts 106 des betreffenden Rohres 34 in Verbindung mit einer axial in bezug auf die Bohrung 104 verstellbaren Stiftschraube 108 gebildet, die in ihrer jeweiligen Stellung durch eine Kontermutter 110 fixierbar ist.

[0036] In Fig. 10 ist das stromabwärts gelegene Ende eines Gaszuführungsrohres 34 innerhalb des umgebenden Reaktionsrohres 16 zu erkennen. Wie ersichtlich wird dieses Ende in bezug auf das Rohr 16 durch Zentriermittel in Gestalt daran angebrachter Flügel 120 zentriert, die zwecks Erleichterung der Einführung in das Rohr 16 stirnseitig angefast sind. In bezug auf die in Fig. 1 dargestellte Zentrierplatte 46 können die Flügel 120 zugleich die Vorsprünge bilden, auf denen die Zentrierplatte bei Entfernung des Rohrbodens 32 mit den Gaszuführungsrohren 16 zur Auflage kommt.

[0037] Des weiteren zeigt die Figur eine Mischdüse 64 am Ende des Gaszuführungsrohres 34, die mit einer Drosselstelle 122 ähnlich der vorausgehend beschriebenen Drosselstelle 66 am Anfang des Gaszuführungsrohres 34 kombiniert ist, welche die gleiche Funktion erfüllt. Im übrigen weist die hier gezeigte Mischdüse 64 neben einer stirnseitigen Gasaustrittsöffnung 124 mehrere teils hintereinanderliegende, teils diametral einander gegenüberliegende - oder auch kranzförmig verteilte - seitliche Gasaustrittsöffnungen 126 auf. Bei am Anfang des Gaszuführungsrohres angeordneter Drosselstelle, wie z. B. nach den Fig. 6 bis 9, könnten derartige seitliche Gasaustrittsstellen sich auch weiter zum Rohranfang hin und selbst bis außerhalb des jeweiligen Reaktionsrohres 16 fortsetzen, um so eine fortschreitende und möglichst intensive Beimischung des zweiten Reaktanten zu

erreichen.

[0038] Um das Mischungsverhältnis der Reaktanten in bezug auf die Gesamtheit der Reaktionsrohre 16 noch weiter zu vergleichmäßigen, als dies etwa vermittels der Drosselorgane an den Gaszuführungsrohren möglich ist, kann dem ersten Reaktanten, z. B. Ethylen, in herkömmlicher Weise bereits vor Eintritt in den Reaktor 2 eine Teilmenge des zweiten Reaktanten, z. B.  $O_2$ , bis zu einer Größe zugemischt werden, welche für sich noch keine riskante Mischung entstehen läßt. Damit nämlich läßt sich die durch die Gaszuführungsrohre 34 im Reaktor 2 zugeführte Teilmenge des zweiten Reaktanten entsprechend reduzieren.

[0039] Es sei angemerkt, daß in bezug auf das angegebene Beispiel  $O_2$  nicht notwendigerweise den durch die Gaszuführungsrohre zugegebenen zweiten Reaktanten bilden muß. Vielmehr ist es auch denkbar,  $O_2$  - oder ein unkritisches Ethylen- $O_2$ -Gemisch - als ersten Reaktanten über die erste Gaszuführungskammer 28 und Ethylen als zweiten Reaktanten über die zweite Gaszuführungskammer hindurch zuzuführen.

[0040] Fig. 11 zeigt, ebenso schematisch, einen im wesentlichen mit demjenigen nach Fig. 1 übereinstimmenden Röhrenreaktor 2, der allerdings innerhalb des Reaktormantels 10 durch eine transversale Trennplatte 130 in zwei in bezug auf den Wärmeträgerkreislauf unterschiedliche Bereiche, 132 und 134, unterteilt ist. Derartige Maßnahmen sind, wie gesagt, der eingangs genannten Veröffentlichung DE-C-22 01 528 (Fig. 5) zu entnehmen.

[0041] Links neben dem gezeigten Reaktor 2 ist diagrammatisch der Temperaturverlauf innerhalb des Reaktors entlang den Reaktionsrohren 16 dargestellt.

[0042] Während man mittels in dem Abschnitt 134 herbeigeführter Verdampfung des Wärmeträgers die Temperatur auf konstantem Niveau hält, läßt man in dem stromaufwärts gelegenen Abschnitt 132 die Temperatur des dort allein flüssigen Wärmeträgers von dem gaseintrittsseitigen Rohrboden 4 hinweg stetig ansteigen. Auf diese Weise gelingt es, den Reaktor ohne Entzündungs- oder Explosionsgefahr und selbst ohne Gefahr einer lokalen Überhitzung, die an der nämlichen Stelle sogleich zu einer unerwünschten Endreaktion führen könnte, unter noch größerer Beladung des Reaktionsgasgemischs mit der kritischen Komponente, wie zum Beispiel  $O_2$ , zu fahren, als dies allein mit der verzögerten Zuführung über die aus der sekundären Gaszuführungskammer 30 gespeisten Gaszuführungsrohre 34 möglich wäre.

[0043] Selbstverständlich lassen sich mit entsprechender Auslegung des Wärmeträgerkreislaufs, ggf. in Verbindung mit mehreren Trennplatten wie der in Fig. 11 gezeigten Trennplatte 130, gewünschtenfalls auch noch kompliziertere Temperaturprofile entlang den Reaktionsrohren 16 erreichen. Zumeist kann man annehmen, daß die Reaktivität am Beginn der Reaktionsrohre infolge des hohen  $O_2$ -Anteils am höchsten ist, so daß es schon aus diesem Grunde wünschenswert ist, dort eine vergleichsweise niedrigere Temperatur zu haben. Im weiteren Verlauf der Reaktion nimmt die Reaktivität ab, was durch Erhöhung der Wärmeträgertemperatur ausgeglichen werden kann. Ab einem bestimmten Umsetzungsgrad hingegen erscheint eine weitere Temperaturerhöhung unangebracht. In diesem Bereich also kann mit Verdampfung gearbeitet werden.

[0044] Der anfallende Dampf wird in einem Separator 136 von der flüssigen Phase getrennt und einer anderweitigen Verwendung zugeführt, während der flüssige Wärmeträger in den Kreislauf zurückgeführt wird. Andererseits wird, bei 138, der als Dampf abgeführte Wärmeträger laufend ersetzt. Dazu stehen die Kreisläufe der Reaktorabschnitte 132 und 134 bei 140 miteinander in Verbindung. 142 ist ein Kühler und 144 eine Pumpe im Kreislauf des Abschnitts 132.

[0045] Sofern für beide Bereiche, 132 und 134, der gleiche Wärmeträger Verwendung findet und umso mehr, wenn ohnehin, wie in Fig. 11 gezeigt, die Kreisläufe beider Abschnitte miteinander in Verbindung stehen, braucht im übrigen die Trennplatte 130 nicht vollkommen dicht zu sein.

[0046] Unter Umständen kann das Reaktionsgas noch in der Gasauslaßkammer 146 unter der Haube 20 reaktionsfähig sein und so zu einem Brand führen. In solchen Fällen empfiehlt es sich, das Reaktionsgas noch vor Austritt aus den Reaktionsrohren 16 mittels des Wärmeträgers zu kühlen und überdies, etwa durch Einbauten, auch der Gasauslaßkammer 146 ein geringstmögliches Volumen zu geben, um so die Verweilzeit des austretenden Reaktionsgases darin zu verkürzen.

[0047] In bestimmten Fällen kann es auch noch wünschenswert sein, um so die Ausbeute pro Durchlauf noch weiter zu verbessern, bezüglich des hauptsächlichen Reaktionsgasstromes einen erfindungsgemäßen Röhrenreaktor mit einem oder mehreren gleich- oder auch andersartigen Reaktoren hintereinanderschalten.

#### Patentansprüche

1. Röhrenreaktor (2) zur Durchführung exotermischer Gasphasenreaktionen, mit einem sich abgedichtet zwischen zwei Rohrböden (4, 6) erstreckenden, von einem Reaktionsgasgemisch durchströmten Reaktionsrohrbündel (8), das innerhalb eines umgebenden Reaktormantels (10) von einem Wärmeträger umspült wird, und mit einer den jeweiligen Rohrboden (4, 6) überspannenden Haube (18, 20) in Verbindung mit einer Gaszuführungs- bzw. einer Gasabführungsleitung, dadurch gekennzeichnet, daß sich innerhalb der gaseintrittsseitigen Haube (18) neben einer mit dem Inneren der Reaktionsrohre (16) in Verbindung stehenden ersten Gaszuführungskammer (28) eine separat speisbare und einen eigenen Rohrboden (32) aufweisende zweite Gaszuführungskammer (30) in Verbindung mit in das Gaseintrittsende oder bis unmittelbar vor das Gaseintrittsende der Reaktionsrohre (16) ragenden separaten Gaszuführungsrohren (34) für ein zweites Reaktionsgas befindet.
2. Röhrenreaktor (2) nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß zumindest eine der beiden Gaszuführungskammern (28, 30) ein wesentlich geringeres Volumen besitzt als der verfügbare Raum unter der gaseintrittsseitigen Haube (18) dies zulassen würde.
3. Röhrenreaktor (2) nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß die betreffende Gaszuführungskammer (28, 30) gegenüber dem verfügbaren Volumen durch mindestens einen Einbau (50) verkleinert ist.
4. Röhrenreaktor (2) nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß der Einbau aus einer in die gaseintrittsseitige Haube (18) transversal verlaufend eingeschweißten Platte (50) besteht.
5. Röhrenreaktor (2) nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß die Platte (50) zusätzlich in ihrem mittleren Bereich an der gaseintrittsseitigen Haube (18) abgestützt ist.
6. Röhrenreaktor (2) nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, daß die Abstützung zumindest teilweise von einem entsprechend massiven zentralen Gaszuführungsrohr (56) gebildet wird.
7. Röhrenreaktor (2) nach einem der Ansprüche 4 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß die Platte (50) und ggf. ebenso der Rohrboden (32) der zweiten Gaszuführungskammer (30) im wesentlichen gewölbt oder konisch ist.

8. Röhrenreaktor (2) nach einem der vorgehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß der Rohrboden (32) der zweiten Gaszuführungskammer (30) gegenüber dem gaseintrittsseitigen Rohrboden (4) des Reaktionsrohrbündels (8) und/oder gegenüber der gaseintrittsseitigen Haube (18) abgestützt ist.

9. Röhrenreaktor (2) nach einem der vorgehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß der Rohrboden (32) der zweiten Gaszuführungskammer (30) zwischen einem Flansch (40) der gaseintrittsseitigen Haube (18) und einem solchen (36) in Verbindung mit dem Reaktormantel (10) eingespannt ist.

10. Röhrenreaktor (2) nach einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß der Rohrboden (32) der zweiten Gaszuführungskammer (30) samt dieser lösbar an dem gaseintrittsseitigen Rohrboden (4) des Reaktionsrohrbündels (8) angebracht ist.

11. Röhrenreaktor (2) nach einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß die gesamte zweite Gaszuführungskammer (30) mit der gaseintrittsseitigen Haube (18) integriert ist.

12. Röhrenreaktor (2) nach einem der vorgehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die zweite Gaszuführungskammer (30) samt den daran anschließenden Gaszuführungsrohren (34) ebenso wie die gaseintrittsseitige Haube (18) abnehmbar ist.

13. Röhrenreaktor (2) nach einem der vorgehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß zumindest eine der beiden Gaszuführungskammern (28, 30) eine Gasverteilungsplatte (41) mit Durchbrechungen variierenden Querschnitts aufweist.

14. Röhrenreaktor (2) nach einem der vorgehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß zumindest eine der Gaszuführungskammern (28, 30) von der Reaktorlängsmittelachse hinweg eine nach Strömungsverteilungsgesichtspunkten zu bzw. abnehmende Höhe aufweist.

15. Röhrenreaktor (2) nach einem der vorgehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Gaszuführungsrohre (34) vor Eintritt in die Reaktionsrohre (16) durch eine - vorzugsweise gasdurchlässige - Zentrierplatte (46) hindurchgeführt sind.

16. Röhrenreaktor (2) nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, daß die Zentrierplatte (46) auf den Gaszuführungsrohren (34) prinzipiell bis zu deren freien Enden hin verschiebbar ist.

17. Röhrenreaktor (2) nach einem der vorgehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Gaszuführungsrohre (34) an ihren freien Enden Zentriermittel (120) zu ihrer Zentrierung in bezug auf die zugehörigen Reaktionsrohre (16) aufweisen.

18. Röhrenreaktor (2) nach einem der vorgehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Gaszuführungsrohre (34) zumindest an ihren freien Enden Mischdüsen (64) zur Verwirbelung des durch sie zugeführten zweiten Reaktanten mit dem ersten aufweisen.

19. Röhrenreaktor (2) nach einem der vorgehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Gaszuführungsrohre (34), vorzugsweise an ihrem Eintritt, ein - ggf. einstellbares - Drosselorgan zur Dosierung der aus ihnen austretenden Strömung aufweisen.

20. Röhrenreaktor (2) nach den Ansprüchen 18 und 19, dadurch gekennzeichnet, daß das Drosselorgan mit der Mischdüse (64) eine Einheit bildet.

21. Röhrenreaktor (2) nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Gaszuführungsrohre (34) jeweils mehrere über ihre Länge verteilte Gasaustrittsstellen aufweisen.

22. Röhrenreaktor (2) nach Anspruch 21, dadurch gekennzeichnet, daß die betreffenden Gasaustrittsstellen zum Teil noch außerhalb der Reaktionsrohre (16) liegen.
23. Röhrenreaktor (2) nach einem der vorgehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Gaszuführungsrohre (34) noch vor einer in dem jeweiligen Reaktionsrohr (16) enthaltenen Katalysatorfüllung (62) enden.
24. Röhrenreaktor (2) nach Anspruch 23, dadurch gekennzeichnet, daß die Gaszuführungsrohre (34) in einer der Katalysatorfüllung (62) vorgelagerten Inertmaterialschiicht enden.
25. Röhrenreaktor (2) nach einem der vorgehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß der Wärmeträgerkreislauf entsprechend ausgelegt ist, die Betriebstemperatur von einem verhältnismäßig niedrigen Wert am Gaseintrittsende der Reaktionsrohre (16) hinweg entlang den Reaktionsrohren zu steigern.
26. Röhrenreaktor (2) nach Anspruch 25, dadurch gekennzeichnet, daß der Wärmeträgerkreislauf des weiteren entsprechend ausgelegt ist, die Betriebstemperatur in einem weiter stromabwärts gelegenen Abschnitt der Reaktionsrohre (16) konstant zu halten.
27. Röhrenreaktor (2) nach Anspruch 26, dadurch gekennzeichnet, daß im Bereich des betreffenden Rohrabschnitts eine Verdampfung des Wärmeträgers erfolgt.
28. Röhrenreaktor (2) nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß der Wärmeträgerkreislauf entsprechend ausgelegt ist, die Betriebstemperatur zum Gasaustrittsende der Reaktionsrohre (16) hin abzusenken.
29. Röhrenreaktor (2) nach einem der vorgehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß eine Gasauslaßkammer (146) innerhalb der gasaustrittsseitigen Haube (20) durch Einbauten oder dergl. ein geringstmögliches Volumen besitzt.
30. Röhrenreaktor (2) nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß ein Teil des in die Reaktionsrohre eingespeisten zweiten Reaktanten dem ersten Reaktanten bereits vor Eintritt in den Reaktor zugemischt wird.
31. Röhrenreaktor (2) nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß er in bezug auf den hauptsächlichsten Reaktionsgasstrom mit einem oder mehreren gleich- oder andersartigen Reaktoren in Reihe geschaltet ist.

---

Hierzu 9 Seite(n) Zeichnungen

---

50

55

60

65

- Leerseite -

Fig.1

2

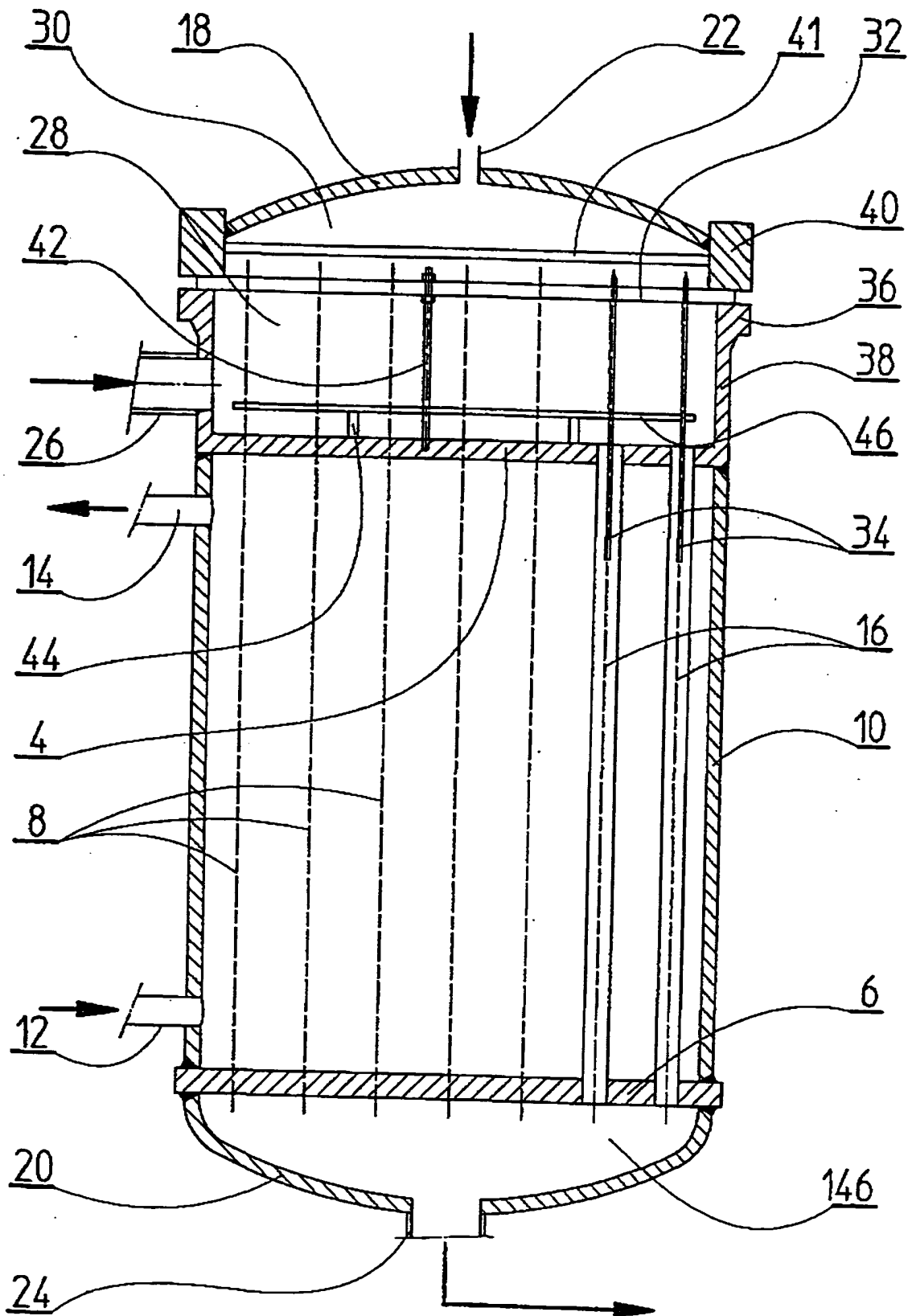




Fig.2

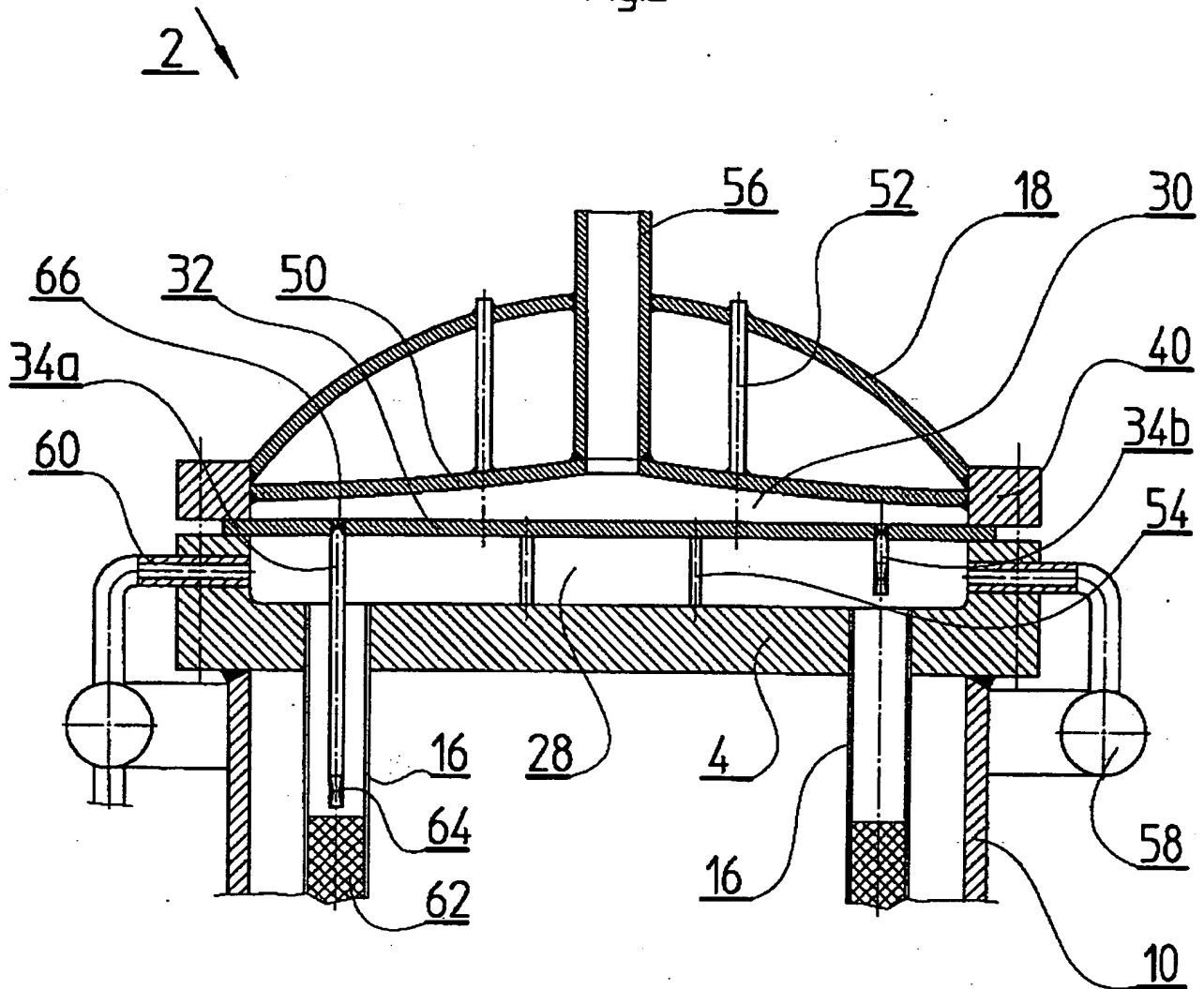


Fig.3

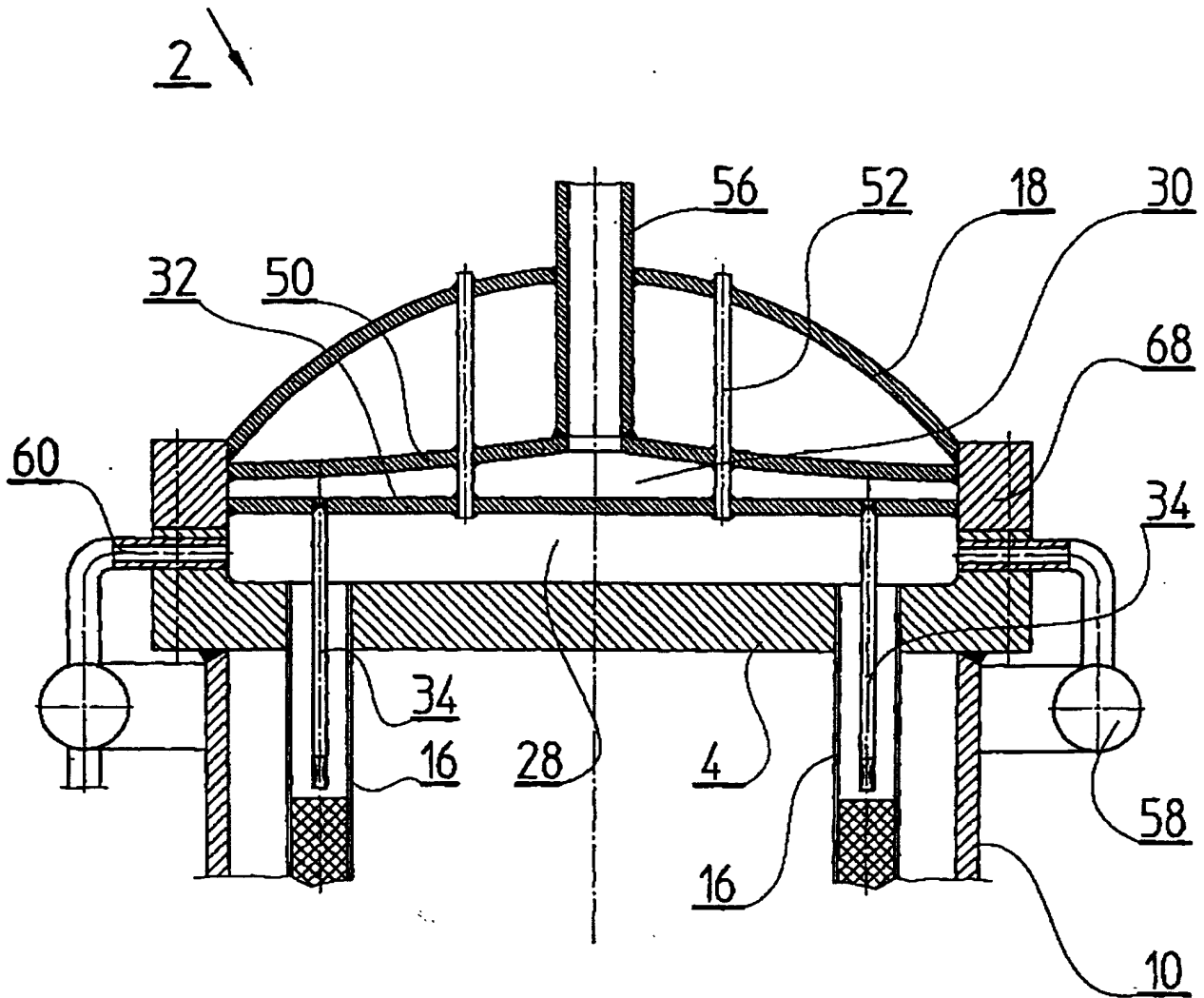


Fig.4

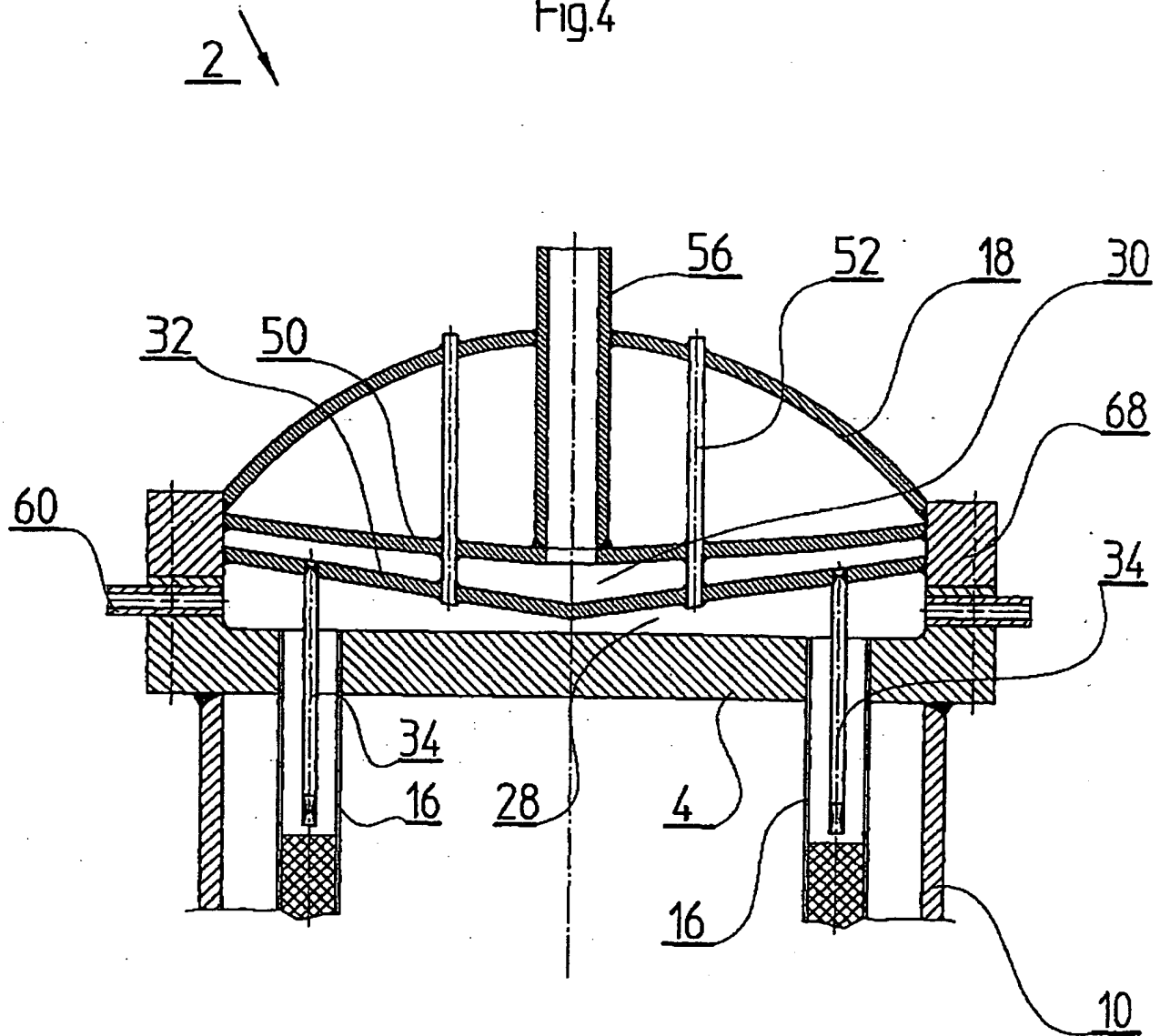


Fig.5

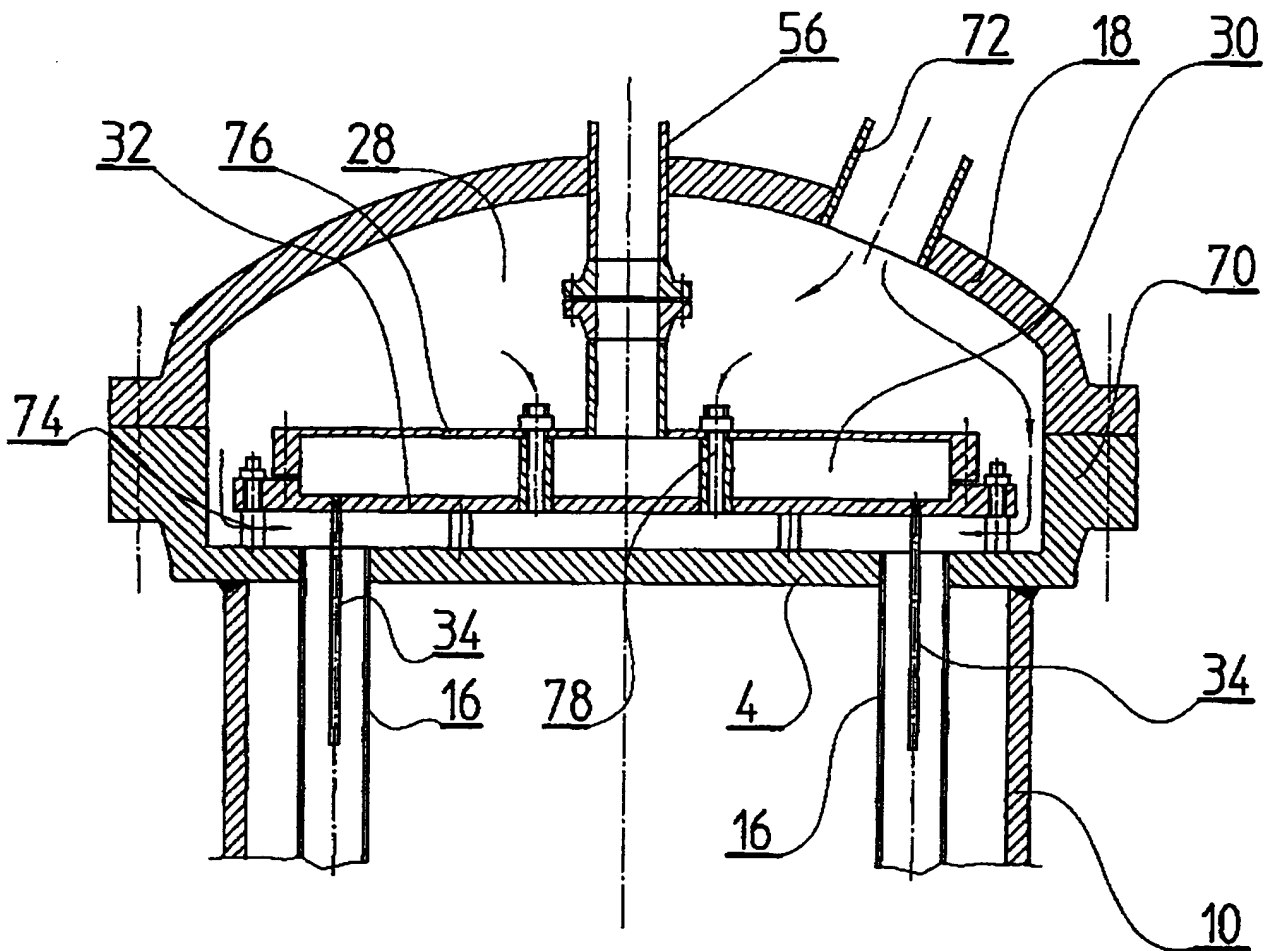


Fig.6

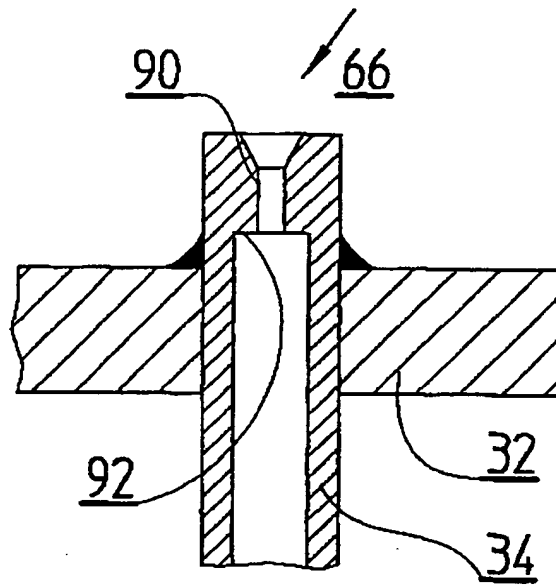


Fig.7

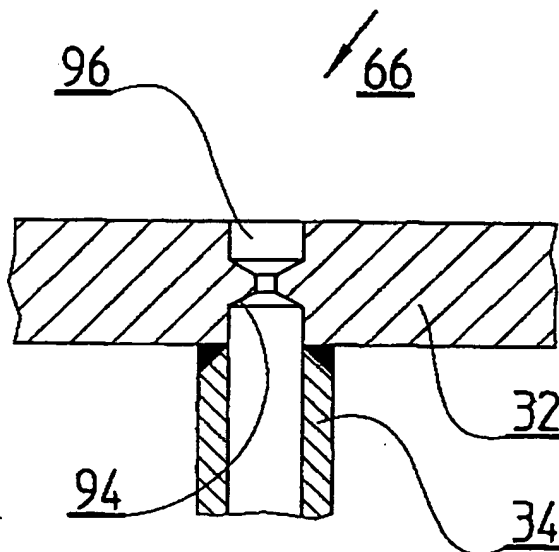


Fig.8

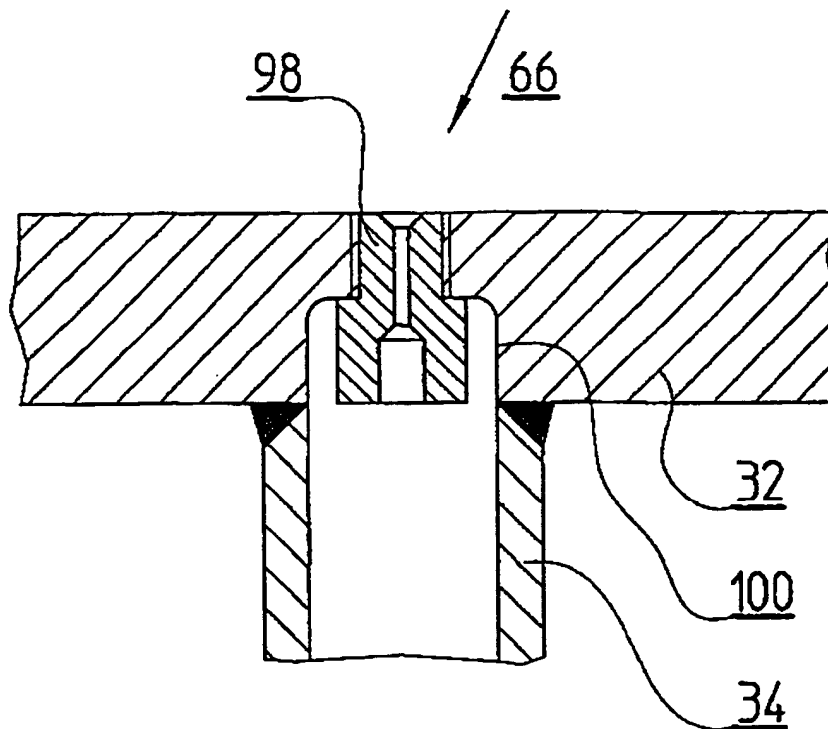


Fig.9

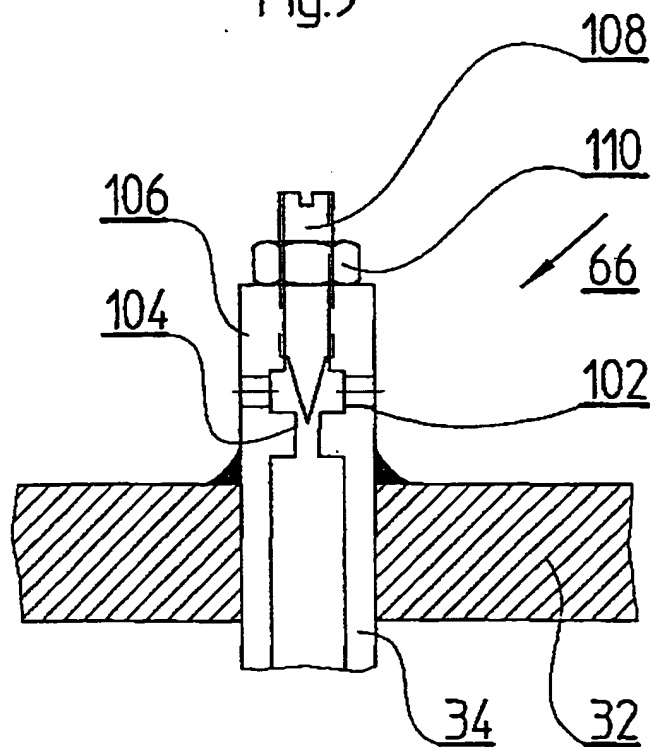


Fig.10

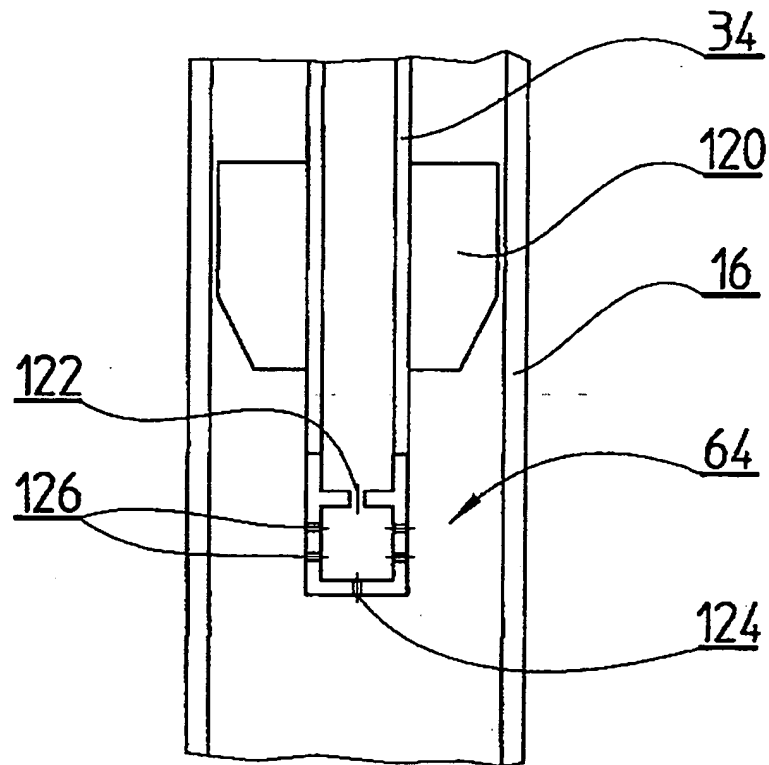
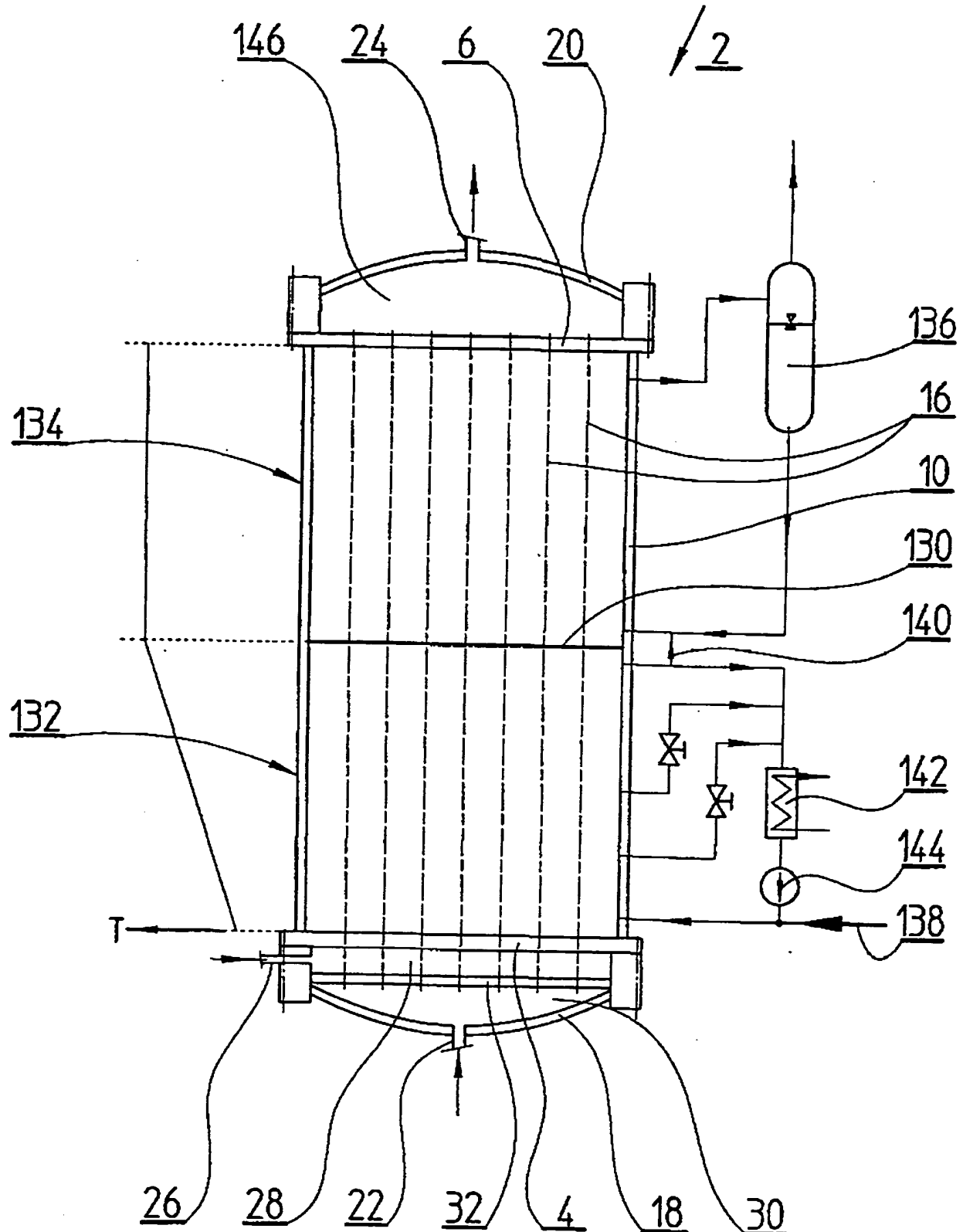


Fig.11





**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ **BLACK BORDERS**
- ☒ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☒ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☒ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**

***This Page Blank (uspto)***